

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-152253

(43)公開日 平成11年(1999)6月8日

(51) Int.Cl.⁶
 C 07 C 211/57
 C 09 K 11/00
 11/06
 H 05 B 33/14
 // H 05 B 33/22

識別記号
 6 2 0

F I
 C 07 C 211/57
 C 09 K 11/00
 11/06
 H 05 B 33/14
 33/22

審査請求 有 請求項の数 4 O L (全 18 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平9-319430

(22)出願日 平成9年(1997)11月20日

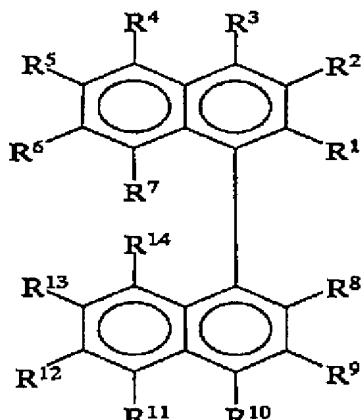
(71)出願人 000004237
 日本電気株式会社
 東京都港区芝五丁目7番1号
 (72)発明者 石川 仁志
 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内
 (72)発明者 小田 敦
 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内
 (72)発明者 東口 達
 東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内
 (74)代理人 弁理士 京本 直樹 (外2名)

(54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子用材料及びこれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

(57)【要約】 (修正有)

【課題】 ビナフチル化合物を正孔輸送層に用いる有機エレクトロルミネッセンス(E L)素子の輝度を向上させ、またビナフチル化合物を発光材料或は電子輸送材料とする有機EL素子を提供する。

【解決手段】 陽極と陰極の間に正孔輸送層を含む一層または複数層の有機薄膜層を有する有機EL素子の正孔輸送層構成材料として、下記一般式【化1】で表されるビナフチル化合物を単独若しくは混合物として含有させた薄膜を用いる。



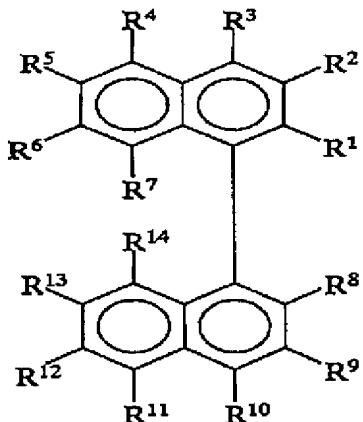
(一般式【化1】中、R¹ - R¹⁴ のうち少なくとも一つは -NAr¹Ar² (Ar¹ は少なくとも1個のスチリル基を置換基として有する炭素数6-20の置換アリール基、またAr² は炭素数6-20の置換若しくは無置換のアリール基を示す。) で表されるジアリールアミノ基である。)

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】一般式〔化1〕で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用化合物。

【化1】

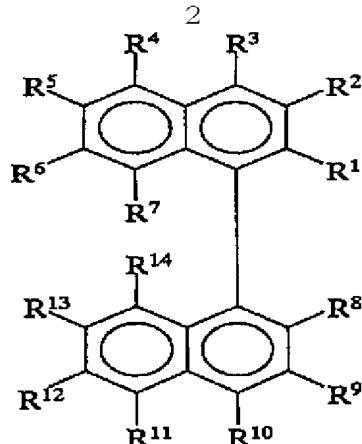


(一般式〔化1〕中、R¹～R¹⁴は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、またはカルボキシル基を表す。また、R¹～R⁷、R⁸～R¹⁴は、それらのうちの2つで環を形成しても良い。ただし、R¹～R¹⁴のうち少なくとも一つは-NAr¹Ar² (Ar¹は少なくとも1個のスチリル基を置換基として有する炭素数6～20の置換アリール基、またAr²は炭素数6～20の置換若しくは無置換のアリール基を示す。)で表されるジアリールアミノ基である。)

【請求項2】陽極と陰極の間に正孔輸送層を含む一層または複数層の有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記正孔輸送層が一般式〔化2〕で表される化合物を単独もしくは混合物として含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化2】

10



20

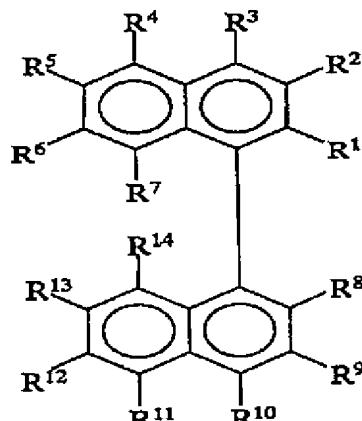
(一般式〔化2〕中、R¹～R¹⁴は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、またはカルボキシル基を表す。また、R¹～R⁷、R⁸～R¹⁴は、それらのうちの2つで環を形成しても良い。ただし、R¹～R¹⁴のうち少なくとも一つは-NAr¹Ar² (Ar¹は少なくとも1個のスチリル基を置換基として有する炭素数6～20の置換アリール基、またAr²は炭素数6～20の置換若しくは無置換のアリール基を示す。)で表されるジアリールアミノ基である。)

30

【請求項3】陽極と陰極の間に発光層を含む一層または複数層の有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層が一般式〔化3〕で表される化合物を単独もしくは混合物として含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化3】

40



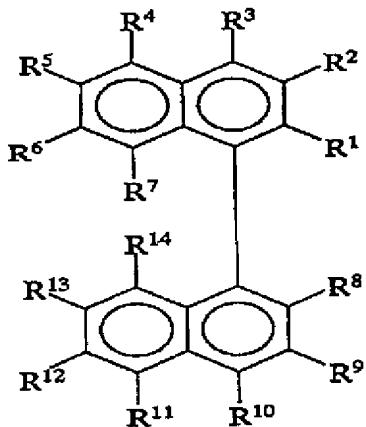
50

(一般式〔化3〕中、R¹～R¹⁴は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若

しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、またはカルボキシル基を表す。また、R¹～R⁷、R⁸～R¹⁴は、それらのうちの2つで環を形成しても良い。ただし、R¹～R¹⁴のうち少なくとも一つは-NAr¹Ar² (Ar¹、Ar²はそれ各自立に炭素数6～20の置換若しくは無置換のアリール基を示す。) で表されるジアリールアミノ基である。)

【請求項4】陽極と陰極の間に電子輸送層を含む一層または複数層の有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記電子輸送層が一般式〔化4〕で表される化合物を単独もしくは混合物として含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化4】



(一般式〔化4〕中、R¹～R¹⁴は、それ各自立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、またはカルボキシル基を表す。また、R¹～R⁷、R⁸～R¹⁴は、それらのうちの2つで環を形成しても良い。ただし、R¹～R¹⁴のうち少なくとも一つは-NAr¹Ar² (Ar¹、Ar²はそれ各自立に炭素数6～20の置換若しくは無置換のアリール基を示す。) で表されるジアリールアミノ基である。)

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、新しい有機エレクトロルミネッセンス素子用化合物及び積層型有機エレクトロルミネッセンス（以下ELと記す。）素子に関する。

【0002】

【従来の技術】有機EL素子は、電界を印加することにより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子の再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。イーストマン・コダック社のC. W. Tangらによる積層型素子による低電圧駆動有機EL素子の報告 (C. W. Tang, S. A. Van Slyke, Applied Physics Letters, 51卷, 913頁, 1987年など) がなされて以来、有機化合物を構成材料とする有機EL素子に関する研究が盛んに行われている。Tangらは、トリス(8-ヒドロキシキノリノールアルミニウム)を発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。現在、EL素子の性能としては、輝度1000cd/m²、効率11m/W、寿命数百時間のものが得られている。

【0003】従来、発光材料としてはトリス(8-キノリノラート)アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ビスチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られており、それらの発光色も青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告されており、カラー表示素子の実現が期待されている（例えば、特開平8-239655号公報、特開平7-138561号公報、或は特開平3-200889号公報等）。

【0004】また、電子輸送性材料としてはオキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体等が良く知られている。

【0005】正孔輸送性材料としてはスターバースト分子である4, 4', 4''-トリス(3-メチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミンやN, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-[1, 1'-ビフェニル]-4, 4'-ジアミン等のトリフェニルアミン誘導体や芳香族ジアミン誘導体が良く知られている（例えば、特開平8-20771号公報、特開平8-40995号公報、特開平8-40997号公報、特開平8-53397号公報、特開平8-87122号公報等）。最近では3, 3'-ジアミノ-1, 1'-ビナフチル誘導体が開示されている（特開平9-255948号公報）。上記化合物は高いガラス転移温度を有し、この化合物を正孔輸送材料として作製した有機EL素子は、高電流密度での駆動条件下で良い信頼性を示すと報告されているが、輝度が低いという問題点がある。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、ビナフチル化合物を正孔輸送層に用いた有機EL素子の輝度を向上させること、及びビナフチル化合物を発光材料、或は電子輸送材料とする有機EL素子を提供することにある。

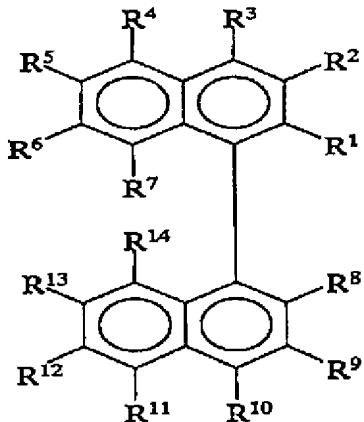
【0007】

【課題を解決するための手段】本発明によれば、特定のビナフチル化合物を正孔輸送層に用いることにより有機EL素子の輝度が向上する。更に、本発明によれば特定のビナフチル化合物を発光材料、或は電子輸送材料として用いた有機EL素子が提供される。

【0008】すなわち第1の本発明は、一般式【化5】で表される有機エレクトロルミネッセンス素子用化合物の発明である。

【0009】

【化5】



【0010】(一般式【化5】中、R¹～R¹⁴は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、またはカルボキシル基を表す。また、R¹～R⁷、R⁸～R¹⁴は、それらのうちの2つで環を形成しても良い。ただし、R¹～R¹⁴のうち少なくとも一つは-NAr¹Ar² (Ar¹は少なくとも1個のスチリル基を置換基として有する炭素数6～20の置換アリール基、またAr²は炭素数6～20の置換若しくは無置換のアリール基を示す。)で表されるジアリールアミノ基である。)

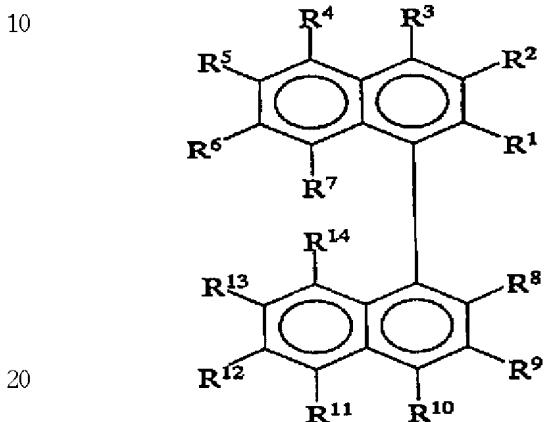
また第2の本発明は、陽極と陰極の間に正孔輸送層を含む一層または複数層の有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記正孔輸送層が前記一般式【化5】で表される化合物を単独もしくは混合物として含有することを特徴とする有機エレクトロルミネ

ッセンス素子の発明である。

【0011】さらに第3の本発明は、陽極と陰極の間に発光層を含む一層または複数層の有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、少なくとも一層が一般式【化6】で示される化合物を単独もしくは混合物として含有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の発明である。

【0012】

【化6】



【0013】(一般式【化6】中、R¹～R¹⁴は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、またはカルボキシル基を表す。)

【0014】また、R¹～R⁷、R⁸～R¹⁴は、それらのうちの2つで環を形成しても良い。ただし、R¹～R¹⁴のうち少なくとも一つは-NAr¹Ar² (Ar¹は少なくとも1個のスチリル基を置換基として有する炭素数6～20の置換アリール基、またAr²は炭素数6～20の置換若しくは無置換のアリール基を示す。)で表されるジアリールアミノ基である。)

更にまた、第4の本発明は、陽極と陰極の間に電子輸送層を含む一層または複数層の有機薄膜層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記電子輸送層が、前記一般式【化6】で表される化合物を単独もしくは混合物として含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の発明である。

【0015】第1発明の化合物は、前記一般式【化5】で示される1,1'-ビナフチル誘導体であり、一般的に3,3'-ジメチルナフチジンを銅粉と共に加熱して二量化するウルマン (Ullmann) 反応により基本骨格が合成される。

【0016】また、スチリル基を置換基として有する炭

素数6～20の置換アリール基の導入も、例えば従来から公知のウイッティッヒ・ホルナー (Wittig-Horner) 反応により行うことが出来る。

【0017】化学構造式は、常法により元素分析、赤外線分析、NMRの結果から、前記一般式【化5】に合致することが確認された。

【0018】

【発明の実施の形態】第2発明に用いる化合物は、前記一般式【化6】で表される構造を有するビナフチル系化合物である。この化合物には前記一般式【化5】で表される新規化合物、及び既知のビナフチル系化合物が含まれる。前記一般式【化6】中のR¹～R¹⁴は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換若しくは無置換のアルキル基、置換若しくは無置換のアルケニル基、置換若しくは無置換のシクロアルキル基、置換若しくは無置換のアルコキシ基、置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、置換若しくは無置換の芳香族複素環基、置換若しくは無置換のアラルキル基、置換若しくは無置換のアリールオキシ基、置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシル基を表す。またR¹～R¹⁴は、それらのうちの2つで環を形成しても良い。但し、R¹～R¹⁴のうち少なくとも一つは-NAr¹Ar² (Ar¹、Ar²はそれぞれ独立に置換若しくは無置換の炭素数6～20のアリール基を示す。)で表されるジアリールアミノ基である。

【0019】ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素が挙げられる。置換アミノ基は-NX¹X²と表され、X¹、X²としてはそれぞれ独立に、C₁～C₈の直鎖または分岐アルキル基、これらのヒドロキシル、ハロゲン、アミノ、シアノ、ニトロ置換アルキル基、フェニル基その他の置換若しくは無置換の縮合環芳香族残基、置換若しくは無置換の複素環芳香族残基が挙げられる。

【0020】置換アミノ基-NX¹X²のX¹、X²として具体的には、それぞれ独立に、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシ-1-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソブチル基、2, 3-ジクロロ-1-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモニエチ

ル基、1, 3-ジブロモイソブチル基、2, 3-ジブロモ-1-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモブチル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソブチル基、2, 3-ジヨード-1-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソブチル基、2, 3-ジアミノ-1-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノブチル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソブチル基、2, 3-ジシアノ-1-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノブチル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソブチル基、2, 3-ジニトロ-1-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロブチル基、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、4-スチリルフェニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ビロリル基、3-ビロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、5-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-

一キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナスリジニル基、2-フェナスリジニル基、3-フェナスリジニル基、4-フェナスリジニル基、6-フェナスリジニル基、7-フェナスリジニル基、8-フェナスリジニル基、9-フェナスリジニル基、10-フェナスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナスロリン-2-イル基、1, 7-フェナスロリン-3-イル基、1, 7-フェナスロリン-4-イル基、1, 7-フェナスロリン-5-イル基、1, 7-フェナスロリン-6-イル基、1, 7-フェナスロリン-8-イル基、1, 7-フェナスロリン-9-イル基、1, 7-フェナスロリン-10-イル基、1, 8-フェナスロリン-2-イル基、1, 8-フェナスロリン-3-イル基、1, 8-フェナスロリン-4-イル基、1, 8-フェナスロリン-5-イル基、1, 8-フェナスロリン-6-イル基、1, 8-フェナスロリン-7-イル基、1, 8-フェナスロリン-9-イル基、1, 9-フェナスロリン-2-イル基、1, 9-フェナスロリン-3-イル基、1, 9-フェナスロリン-4-イル基、1, 9-フェナスロリン-5-イル基、1, 9-フェナスロリン-6-イル基、1, 9-フェナスロリン-7-イル基、1, 9-フェナスロリン-8-イル基、1, 9-フェナスロリン-10-イル基、1, 10-フェナスロリン-2-イル基、1, 10-フェナスロリン-3-イル基、1, 10-フェナスロリン-4-イル基、1, 10-フェナスロリン-5-イル基、2, 9-フェナスロリン-1-イル基、2, 9-フェナスロリン-3-イル基、2, 9-フェナスロリン-4-イル基、2, 9-フェナスロリン-5-イル基、2, 9-フェナスロリン-6-イル基、2, 8-フェナスロリン-7-イル基、2, 8-フェナスロリン-9-イル基、2, 8-フェナスロリン-10-イル基、2, 7-フェナスロリン-1-イル基、2, 7-フェナスロリン-3-イル基、2, 7-フェナスロリン-4-イル基、

2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-七-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-七-ブチル-1-インドリル基、4-七-ブチル-1-インドリル基、2-七-ブチル-3-インドリル基、4-七-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

【0021】具体的な置換若しくは無置換のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソブチル基、2, 3-ジヒドロキシエチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソブチル基、2, 3-ジクロロ-7-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソブチル基、2, 3-ジブロモ-7-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソブチル基、2, 3-ジヨード-7-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソブチル基、2, 3-ジアミノ-7-ブチル基等が挙げられる。

11

チル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ- α -ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ- α -ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基、等が挙げられる。

【0022】置換若しくは無置換のアルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1, 3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリル基、1, 1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3, 3-ジフェニルアリル基、1, 2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられる。

【0023】置換若しくは無置換のシクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

【0024】置換若しくは無置換のアルコキシ基は、-O-Yで表される基であり、Yとしては、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ- α -ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ- α -ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-プロモエチル基、2-プロモエチル基、2-プロモイソブチル基、1, 2-ジプロモエチル基、1, 3-ジプロモイソプロピル基、2, 3-ジプロモ- α -ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード- α -ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ- α -ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1

12

-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ- α -ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ- α -ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

10 【0025】置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p- α -ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-t-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基等が挙げられる。

【0026】また、置換若しくは無置換の芳香族複素環基としては1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、

13

1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5-イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン-8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8-フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1, 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジ

14

ニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-t-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、2-t-ブチル-1-インドリル基、4-t-ブチル-1-インドリル基、2-t-ブチル-3-インドリル基、4-t-ブチル-3-インドリル基、等が挙げられる。
【0027】置換若しくは無置換のアラルキル基としては、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-t-ブチル基、 α -ナフチルメチル基、1- α -ナフチルエチル基、2- α -ナフチルエチル基、1- α -ナフチルイソプロピル基、2- α -ナフチルイソプロピル基、 β -ナフチルメチル基、1- β -ナフチルエチル基、2- β -ナフチルエチル基、1- β -ナフチルイソプロピル基、2- β -ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル基、o-メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m-クロロベンジル基、o-クロロベンジル基、p-ブロモベンジル基、m-ブロモベンジル基、o-ブロモベンジル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、o-アミノベンジル基、p-ニトロベンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。
【0028】置換若しくは無置換のアリールオキシ基は、-OZと表され、Zとしてはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセ

ニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ビレニル基、2-ビレニル基、4-ビレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トトリル基、m-トトリル基、p-トトリル基、p-t-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4"-セ-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ビロリル基、3-ビロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバジリル基、2-カルバジリル基、3-カルバジリル基、4-カルバジリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1,7-フェナンスロリン-2-イル基、1,7-フェナンスロリン-3-イル基、1,7-フェナンスロリン-4-イル基、1,7-フェナンスロリン-5-イル基、1,7-フェナンスロリン-6-イル基、1,7-フェナンスロリン-8-イル基、1,7-フェナンスロリン-9-イル基、1,7-フェナンスロリン-10-イル基、1,8-フェナンスロリン-2-イル基、1,8-フェナンスロリン-3-イル基、1,8-フェナンスロリン-4-イル基、1,8-フェナンスロリン-5-イル基、1,8-フェナン

ンドリル墓等が挙げられる。

【0029】置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基は $-COOY$ と表され、Yとしてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシt-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ- t -ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、プロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモt-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨードt-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノt-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノt-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロt-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

【0030】また、環を形成する2価基の例としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる。

【0031】炭素数6-20のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ナフタセニル基、ピレニル基等が挙げられる。また、これらアリール基の置換基としては、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、前記の置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、前記の置換若しくは無置換のアルキル基、前記の置換若しくは無置換のアルケニル基、前記の置換若しくは無置換のシクロアルキル基、前記の置換若しくは無置換のアルコキシ基、前記の置換若

しくは無置換の芳香族炭化水素基、前記の置換若しくは無置換の芳香族複素環基、前記の置換若しくは無置換のアラルキル基、前記の置換若しくは無置換のアリールオキシ基、前記の置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシル基が挙げられる。

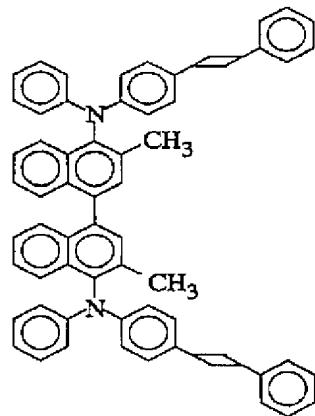
【0032】具体的な例としては、4, 4' - ビス (ジフェニルアミノ) - 1, 1' - ビナフチル、4, 4' - ビス (フェニル-p-トリルアミノ) - 1, 1' - ビナフチル、4-(ジ-p-トリルアミノ) - 1, 1' - ビナフチル、4, 4' - ビス (ジ-p-トリルアミノ) - 1, 1' - ビナフチル等が実用的である。但し、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0033】また、 A^{r1} 、 A^{r2} が置換基として有するスチリル基としては、無置換のスチリル基、2、2-ジフェニルビニル基のほか、末端のフェニル基の置換基として、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、前記の置換若しくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、前記の置換若しくは無置換のアルキル基、前記の置換若しくは無置換のアルケニル基、前記の置換若しくは無置換のシクロアルキル基、前記の置換若しくは無置換のアルコキシ基、前記の置換若しくは無置換の芳香族炭化水素基、前記の置換若しくは無置換の芳香族複素環基、前記の置換若しくは無置換のアラルキル基、前記の置換若しくは無置換のアリールオキシ基、前記の置換若しくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシル基等を有する置換スチリル基および置換2、2-ジフェニルビニル基等が挙げられる。

【0034】具体的な例としては、前記の3, 3' -ジメチルービス (ジアリールアミノ) -1, 1' -ビナフチル誘導体、特に構造式が【化7】、【化8】、【化9】で示されるスチリル置換ジフェニルアミノ基を有する1, 1' -ビナフチル誘導体が輝度の高い発光層が得られるので好ましく、実用的である。但し、本発明はこれらに限定されるものではない。

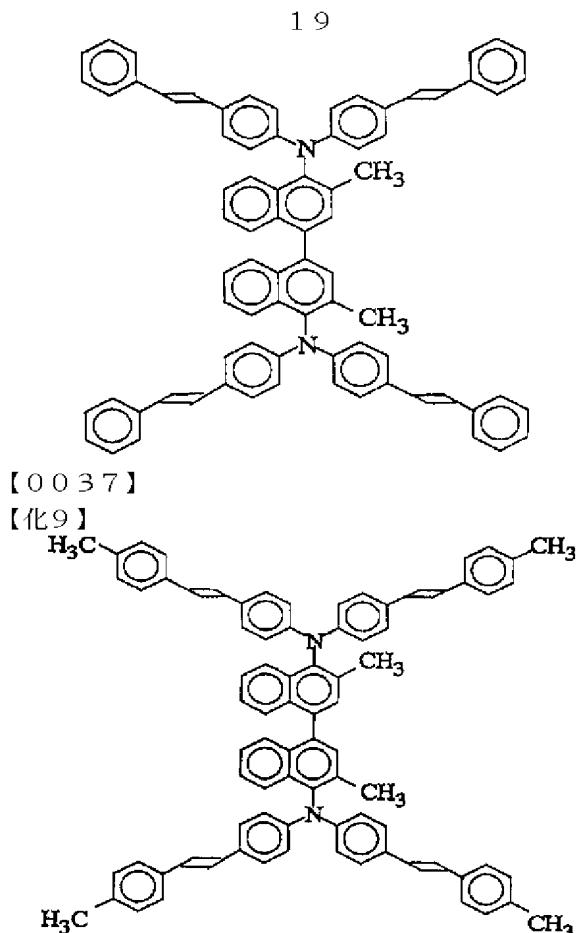
[0035]

【化7】



〔0036〕

50 【化8】



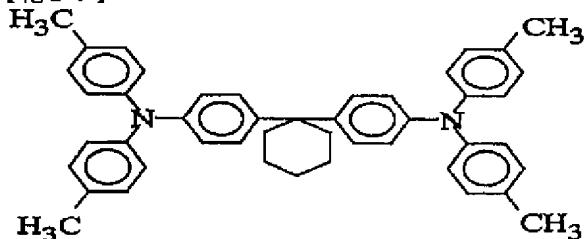
【0038】本発明の化合物は従来より公知の方法にて合成することができる。例えば、ビナフチル骨格を有するアミン化合物と芳香族ハロゲン化合物、あるいはビナフチル骨格を有するハロゲン化合物と芳香族アミンとの前記U11mann反応によりジフェニルアミノ基を有するビナフチル化合物を合成することができる。またスチリル誘導体も、従来より公知の前記Wittig-Horner反応を用いることにより合成することができる。

【0039】本発明における有機EL素子の構成は、電極間に有機層を1層あるいは2層以上積層した構造であり、その例として、図1-4に示すように(a)陽極、発光層、陰極、(b)陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極、(c)陽極、正孔輸送層、発光層、陰極、あるいは(d)陽極、発光層、電子輸送層、陰極等の構造が挙げられる。本発明における化合物は上記のどの有機層に用いられてもよく、他の正孔輸送材料、発光材料、電子輸送材料にドープさせて使用することも可能であるが、特に【化1】で示される化合物を正孔輸送層に、また【化2】で示される化合物を発光層または電子輸送層に用いた場合に効果が大きい。

【0040】第3および第4の本発明に用いられる正孔輸送材料は特に限定されず、通常正孔輸送層用として使用されている既知の化合物であれば何を使用してもよ

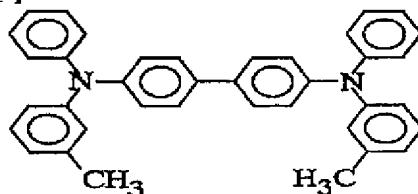
10 【0041】

【化10】



20 【0042】

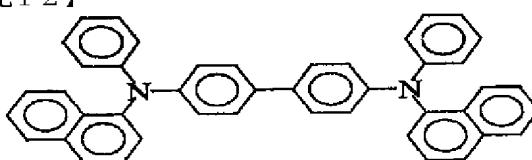
【化11】



30

【0043】

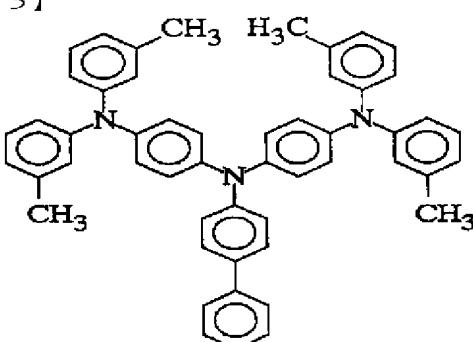
【化12】



40

【0044】

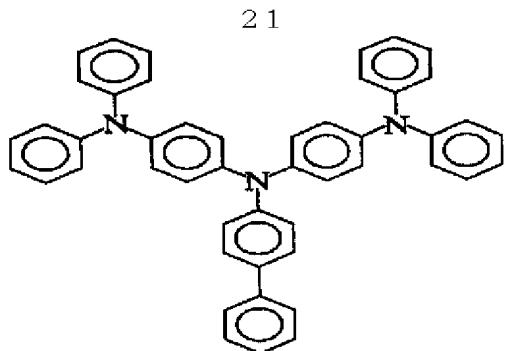
【化13】



50

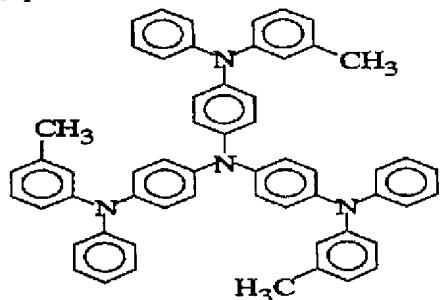
【0045】

【化14】

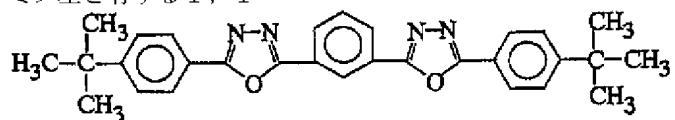


【0046】

【化15】

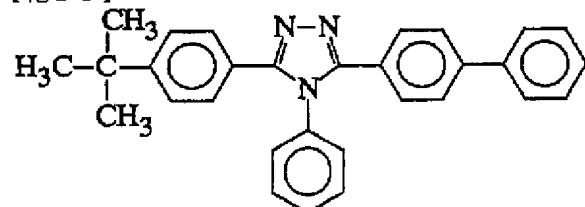


【0047】更に、これら既知の正孔輸送材料に本発明のスチリル置換ジフェニルアミノ基を有する1,1'-*のスチリル置換ジフェニルアミノ基を有する1,1'-*



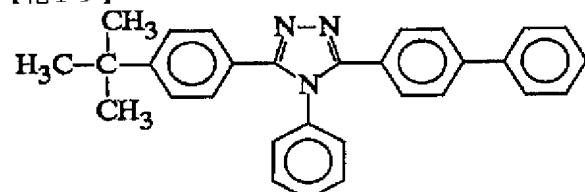
【0051】

【化18】



【0052】

【化19】



【0053】

【化20】

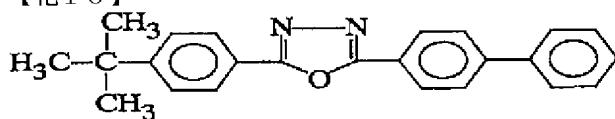
*ビナフチル誘導体をドープ等により含有させて正孔輸送層兼発光層として用い、上記(d)のように素子を構成することができる。

【0048】第2および第3の本発明に用いられる電子輸送材料は特に限定されず、通常電子輸送用として使用されている既知の化合物であれば何を使用してもよい。例えば、2-(4-ビフェニル)-5-(4-*t*-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール【化16】、ビス{2-(4-*t*-ブチルフェニル)-1,

10 3,4-オキサジアゾール}-*m*-フェニレン【化17】、等のオキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体（【化18】、【化19】等）、或はキノリノール系の金属錯体（【化20】乃至【化23】等）が挙げられる。

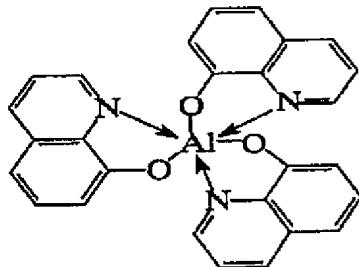
【0049】

【化16】



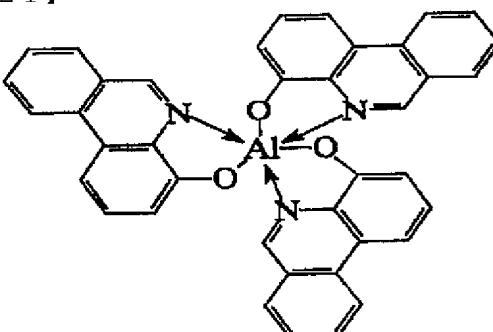
【0050】

【化17】



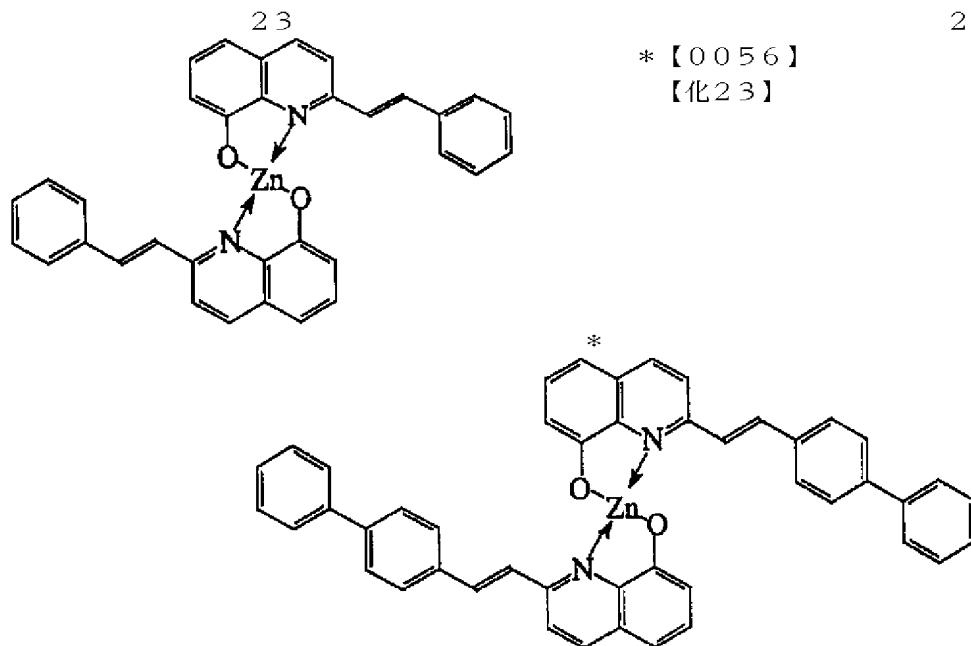
【0054】

【化21】



【0055】

【化22】

*【0056】
【化23】

【0057】更に、これら既知の電子輸送材料に本発明のスチリル置換ジフェニルアミノ基を有する1,1'-ビナフチル誘導体をドープ等により含有させて電子輸送層兼発光層として用い、上記(c)のように素子を構成することができる。

【0058】有機薄膜EL素子の陽極としては、正孔を正孔輸送層に注入する役割を担うものであり、4.5eV以上の光電子仕事関数を有するものが効果的である。本発明には既知の陽極材料が用いられ、その具体例としては、酸化インジウム錫合金(ITO)、酸化錫(NE SA)、金、銀、白金、銅等が適用できる。

【0059】また陰極としては、電子輸送層又は発光層に電子を注入するのが目的であり、仕事関数の小さい材料が好ましい。本発明には既知の陰極材料が使用でき、特に限定されない。具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム-インジウム合金、マグネシウム-アルミニウム合金、アルミニウムリチウム合金、アルミニウム-スカンジウムリチウム合金、マグネシウム-銀合金等が使用できる。

【0060】本発明の有機EL素子の各層の形成方法は、従来公知の薄膜形成方法が使用でき、特に限定されない。本発明の有機EL素子に用いる前記一般式【化1】及び【化2】で示される化合物を含有する有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法(MBE法)、或は溶媒に溶解した溶液のディッピング法、キャスティング法、又はスピノコーティング法、バーコート法若しくはロールコート法等の塗布法など、公知の方法で形成することができる。実用的には、真空蒸着法、スピノコーティング法等による形成方法が用いられる。

【0061】本発明の有機EL素子の各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じ易く、逆に厚すぎると高い印加電圧が※50

※必要となり効率が悪くなるため、通常は数nmから1μmの範囲が用いられる。

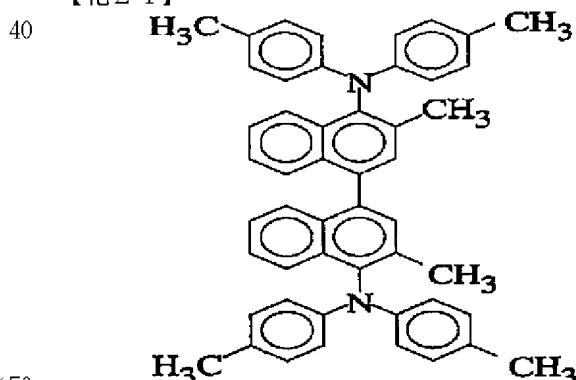
【0062】

【実施例】以下、実施例を以て本発明を詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。

【0063】【合成例1】3,3'-ジメチル-4,4'-ビス(ジ-p-トリルアミノ)-1,1'-ビナフチル(【化24】の化合物)の合成: 100m1三ツ口フラスコに3,3'-ジメチルナフチジンを2g、p-ヨードトルエンを5.6g、銅粉末を0.2g、炭酸カリウムを2g、ニトロベンゼンを10m1入れ、200°Cで30時間攪拌した。反応終了後トルエンを加え、ろ過して無機物を除いた。次いでろ液を水洗して硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を留去して、トルエン-ヘキサン混合溶媒を用いたシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより分離精製して3,3'-ジメチル-4,4'-ビス(ジ-p-トリルアミノ)-1,1'-ビナフチルを2.2g合成した。

【0064】

【化24】



25

【0065】これは前記一般式【化2】で表される化合物に属し、この構造式の確認は常法により行った。

【0066】【合成例2】 3, 3'-ジメチル-4, 4'-ビス(4-スチリルジフェニルアミノ)-1, 1'-ビナフチル(【化25】の化合物)の合成: 10 0m1三ツ口フラスコに3, 3'-ジメチルナフチジンを4g、ヨードベンゼンを10. 4g、銅粉末を0. 4g、炭酸カリウムを4. 0g、ニトロベンゼンを15m1入れ、200°Cで30時間攪拌した。反応の終了後トルエンを加え、ろ過して無機物を除いた。次いで、ろ液を水洗して硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒を留去して、トルエン-ヘキサン混合溶媒を用いたシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより分離精製して3, 3'-ジメチル-4, 4'-ビス(ジフェニルアミノ)-1, 1'-ビナフチルを4g合成した。

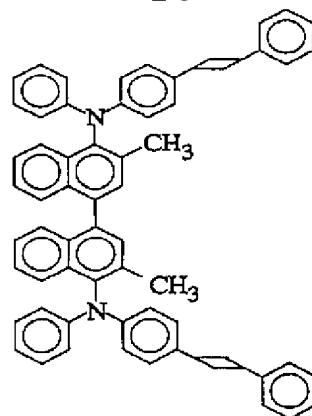
【0067】次いで、50m1三ツ口フラスコに、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ビス(ジフェニルアミノ)-1, 1'-ビナフチルを2g、トルエンを10m1、オキシ塩化リンを1. 1g入れ、攪拌しつつこれにN-メチルホルムアニド1. 0gをゆっくり滴下し室温で1時間攪拌後、50°Cで4時間攪拌した。反応の終了後、反応溶液を冷水に注ぎ、トルエンで抽出し、水洗後トルエン溶液を硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒留去後、トルエン-ヘキサン混合溶媒を用いたシリカゲルカラムクロマトグラフィーにより分離精製して3, 3'-ジメチル-4, 4'-ビス(4-ホルミルジフェニルアミノ)-1, 1'-ビナフチルを1. 5g合成した。

【0068】次いで、50m1三ツ口フラスコにベンジルホスホン酸ジエチルを1. 4g、水素化ナトリウムを0. 2g、ジメチルスルホキシドを10m1入れ、攪拌しながらこれに3, 3'-ジメチル-4, 4'-ビス(4-ホルミルジフェニルアミノ)-1, 1'-ビナフチル1gのジメチルスルホキシド5m1溶液をゆっくり滴下し、室温で1時間攪拌後、40°Cで5時間攪拌した。反応終了後、反応溶液を水に注ぎトルエンで抽出した。硫酸マグネシウムで乾燥し、溶媒留去後トルエン-リグロインを用いたシリカゲルカラムクロマトグラフィーで分離精製して3, 3'-ジメチル-4, 4'-ビス(4-スチリルジフェニルアミノ)-1, 1'-ビナフチルを合成した。

【0069】

【化25】

10



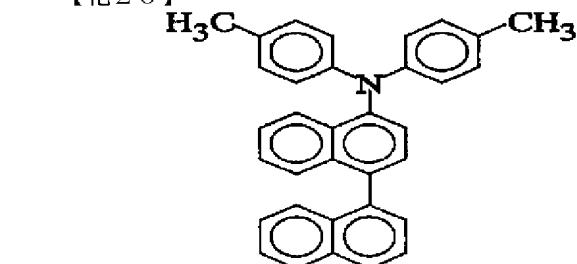
【0070】これは前記一般式【化1】で表される化合物に属し、この構造式の確認は常法により行った。

【0071】以下、本発明の化合物を発光層(実施例1-11)、正孔輸送材料との混合薄膜を発光層(実施例12-14)、電子輸送材料との混合薄膜を発光層(実施例15-17)、正孔輸送層(実施例18-20)及び電子輸送層(実施例21-25)として用いた例を示す。

【0072】【実施例1】本発明の一実施態様として構成したEL素子の断面構造を図1に示す。図1に従い実施例1の有機薄膜EL素子の作製手順について説明する。このEL素子は陽極2/発光層4/陰極6により構成されている。ガラス基板1の上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/cm/cmになるよう製膜し、陽極2とした。その上に発光層4として、4-(ジ-p-トリルアミノ)-1, 1'-ビナフチル【化26】の薄膜を真空蒸着法にて40nm形成した。

【0073】

【化26】



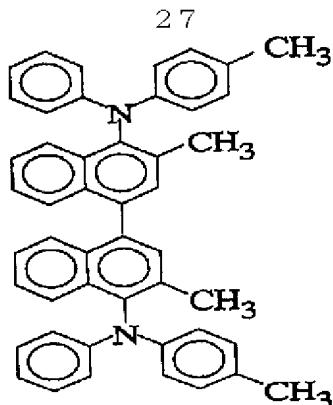
【0074】次に陰極6としてマグネシウム-銀合金の薄膜を真空蒸着法にて200nm形成して有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を5V印加したところ、150cd/m²の発光が得られた。

【0075】【実施例2】発光材料として、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ビス(4-メチルジフェニルアミノ)-1, 1'-ビナフチル【化27】を用いる以外は実施例1と同様の操作を行い、同様な構成の有機EL素子を作製した。

【0076】

【化27】

50



【0077】この素子に、直流電圧を5V印加したところ、250cd/m²の発光が得られた。

【0078】【実施例3】発光材料として、3, 3' -ジメチル-4, 4' -ビス(ジ-p-トリルアミノ)-1, 1' -ビナフチル(前記【化24】)を用いる以外は実施例1と同様の操作を行い、同様な構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を5V印加したところ、250cd/m²の発光が得られた。

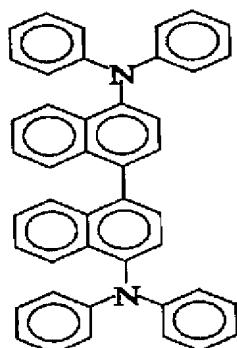
【0079】【実施例4】発光材料として、3, 3' -ジメチル-4, 4' -ビス(フェニル-p-β-スチルフェニルアミノ)-1, 1' -ビナフチル(前記【化25】)を用いる以外は実施例1と同様の操作を行い、同様な構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を5V印加したところ、480cd/m²の発光が得られた。

【0080】【実施例5】発光材料として、構造式が前記【化9】で示される化合物を用いる以外は実施例1と同様の操作を行い、同様な構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を5V印加したところ、650cd/m²の発光が得られた。

【0081】【実施例6】ガラス基板上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/cm/cmになるように製膜し、陽極とした。その上に4, 4' -ビス(ジフェニルアミノ)-1, 1' -ビナフチル【化28】のクロロホルム溶液を用いたスピンドル法により40nmの発光層を形成した。

【0082】

【化28】



10 10 【0083】次に、陰極としてマグネシウム-銀合金を真空蒸着法にて200nmの薄膜に形成して、図1と同様な構成の有機EL素子を作製した。このEL素子に直流電圧を5V印加したところ、120cd/m²の発光が得られた。

【0084】【実施例7】本発明の別の一実施態様として構成したEL素子の断面構造を図2に示す。図2に従い実施例7の有機薄膜EL素子の作製手順について説明する。このEL素子は、陽極2/正孔輸送層3/発光層4/電子輸送層5/陰極6により構成されている。ガラス基板1の上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/cm/cmになるように製膜し、陽極2とした。その上に正孔輸送層3として、N, N' -ジフェニル-N, N' -ビス(3-メチルフェニル)-[1, 1' -ビフェニル]-4, 4' -ジアミン(前記【化11】)を真空蒸着法にて50nmの薄膜に形成した。次に、発光層4として、3, 3' -ジメチル-4, 4' -ビス(4-メチルジフェニルアミノ)-1, 1' -ビナフチル(前記【化27】)を真空蒸着法にて40nmの薄膜に形成した。さらに、電子輸送層5として2-(4-ビフェニル)-5-(4-チアブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール(前記【化16】)を真空蒸着法にて20nmの薄膜に形成した。最後に陰極6としてマグネシウム-銀合金を真空蒸着法によって200nm形成して有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、1200cd/m²の発光が得られた。

20 20 【0085】【実施例8】発光材料として構造式が前記【化25】で示される化合物を用いる以外、実施例7と同様の操作を行い、図2と同様な構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、2500cd/m²の発光が得られた。

30 30 【0086】【実施例9】正孔輸送材料として、N, N' -ジフェニル-N, N-ビス(1-ナフチル)-1, 1' -ビフェニル-4, 4' -ジアミン(前記【化12】)を、電子輸送材料としてビス{2-(4-チアブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール}-m-フェニレン(前記【化17】)を用いる以外は実施例7と同様の操作を行い、図2と同様な構成の有機EL

40 40 素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、1600cd/m²の発光が得られた。

【0087】【実施例10】正孔輸送材料として構造式が前記【化13】で示される化合物を、発光材料として構造式が前記【化25】で示される化合物を、電子輸送材料として構造式が前記【化20】で示される化合物を用いる以外は実施例7と同様の操作を行い、図2と同様な構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、2700cd/m²の発光が得られた。

50 50 【0088】【実施例11】正孔輸送材料として構造式

が前記【化14】で示される化合物を、発光材料として構造式が前記【化9】で示される化合物を、電子輸送材料として構造式が前記【化21】で示される化合物を用いる以外は実施例7と同様の操作を行い、図2と同様な構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、3200cd/m²の発光が得られた。

【0089】[実施例12] 本発明のさらに別の一実施態様として構成したEL素子の断面構造を図4に示す。図4に従い実施例12の有機薄膜EL素子の作製手順について説明する。このEL素子は陽極2/発光層4/電子輸送層5/陰極6により構成されている。ガラス基板1上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/cm/cmになるように製膜し、陽極2とした。その上に発光層4としてN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(1-ナフチル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(前記【化12】)と3,3'-ジメチル-4,4'-ビス(4-メチルジフェニルアミノ)-1,1'-ビナフチル(前記【化27】)を1:10の重量比で共蒸着して、50nmの薄膜を形成した。次いで電子輸送層5として構造式が(前記【化18】)で示される化合物を真空蒸着法にて50nmの薄膜に形成した。次に陰極6として、マグネシウム-銀合金を200nmの薄膜に形成してEL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、1200cd/m²の発光が得られた。

【0090】[実施例13] 3,3'-ジメチル-4,4'-ビス(4-メチルジフェニルアミノ)-1,1'-ビナフチル(前記【化27】)の代わりに3,3'-ジメチル-4,4'-ビス(4-β-スチリルジフェニルアミノ)-1,1'-ビナフチル(前記【化25】)を用いる以外は実施例12と同様の操作を行い、図4と同様な構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、2100cd/m²の発光が得られた。

【0091】[実施例14] ガラス基板上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/cm/cmになるように製膜し、陽極とした。その上に、3,3'-ジメチル-4,4'-ビス(4-β-スチリルジフェニルアミノ)-1,1'-ビナフチル(前記【化25】)とN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(1-ナフチル)-1,1'-ビフェニル)-4,4'-ジアミン(前記【化12】)をモル比で1:10の割合で含有するクロロホルム溶液を用いたスピンドロート法により40nmの発光層を形成した。次に構造式が前記【化19】で示される化合物を真空蒸着法により蒸着して50nmの電子輸送層を形成し、その上に陰極としてマグネシウム-銀合金を真空蒸着法により200nmの薄膜に形成して、図4と同様な有機EL素子を作製した。この素子に、直流電圧を10V印加したところ、11000c

d/m²の発光が得られた。

【0092】[実施例15] 本発明のさらに別の一実施態様として構成したEL素子の断面構造を図3に示す。図3に従い実施例15の有機薄膜EL素子の作製手順について説明する。この素子は陽極2/正孔輸送層3/発光層4/陰極6により構成されている。ガラス基板1上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/cm/cmになるように製膜し、陽極2とした。その上に正孔輸送層3としてN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(1-ナフチル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(前記【化12】)を、真空蒸着法にて50nmの薄膜に形成した。次に、発光層4として(前記【化20】)と3,3'-ジメチル-4,4'-ビス(4-メチルジフェニルアミノ)-1,1'-ビナフチル(前記【化27】)とを20:1の重量比で真空共蒸着して50nmの薄膜に形成した。次に陰極6としてマグネシウム-銀合金を200nmの薄膜に形成してEL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、1500cd/m²の発光が得られた。

【0093】[実施例16] 発光層として、構造式が前記【化20】で示される化合物と3,3'-ジメチル-4,4'-ビス(4-β-スチリルジフェニルアミノ)-1,1'-ビナフチル(前記【化25】)とを20:1の重量比で真空共蒸着して形成した50nmの薄膜を用いる以外は実施例15と同様の操作を行い、図3と同様な有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、2000cd/m²の発光が得られた。

【0094】[実施例17] 正孔輸送材料としてN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(3-メチルフェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン(前記【化11】)を、発光層として構造式が(前記【化22】)で示される化合物と構造式が前記【化9】で示される化合物とを20:1の重量比で真空共蒸着して形成した膜を用いる以外は実施例15と同様の操作を行い、図3と同構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、2500cd/m²の発光が得られた。

【0095】[実施例18] 正孔輸送材料として3,3'-ジメチル-4,4'-ビス(4-β-スチリルジフェニルアミノ)-1,1'-ビナフチル(前記【化25】)を、発光層として構造式が(前記【化22】)で示される化合物を用いる以外は実施例7と同様の真空蒸着操作を行い、図3と同構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、1200cd/m²の発光が得られた。

【0096】[実施例19] 正孔輸送材料として構造式が前記【化8】で示される化合物を用いる以外は実施例18と同様の操作を行い、図3と同構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したとこ

31

ろ、 $1300\text{ cd}/\text{m}^2$ の発光が得られた。

【0097】[実施例20] 正孔輸送材料として構造式が前記[化9]で示される化合物を用いる以外は、実施例18と同様の操作を行い、図3と同構成の有機EL素子を作製した。この素子に、直流電圧を10V印加したところ、 $1500\text{ cd}/\text{m}^2$ の発光が得られた。

【0098】[実施例21] 正孔輸送材料としてN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス(1-ナフチル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン(前記[化12]を、発光材料として構造式が(前記[化22])で示される化合物を、電子輸送材料として3,3'-ジメチル-4,4'-ビス(4-メチルジフェニルアミノ)-1,1'-ビナフチル(前記[化27])を用いる以外は実施例7と同様の真空蒸着操作を行い、図3と同構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $1000\text{ cd}/\text{m}^2$ の発光が得られた。

【0099】[実施例22] 電子輸送材料として3,3'-ジメチル-4,4'-ビス(ジ-p-トリルアミノ)-1,1'-ビナフチル(前記[化24])を用いる以外は実施例21と同様の操作を行い、図3と同構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $800\text{ cd}/\text{m}^2$ の発光が得られた。

【0100】[実施例23] 電子輸送材料として3,3'-ジメチル-4,4'-ビス(4- β -スチリルジフェニルアミノ)-1,1'-ビナフチル(前記[化25])を用いる以外は実施例21と同様の操作を行い、図3と同構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $500\text{ cd}/\text{m}^2$ の発光が得られた。

【0101】[実施例24] 電子輸送材料として構造式が前記[化8]で示される化合物を用いる以外は実施例

32

21と同様の操作を行い、図3と同構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $700\text{ cd}/\text{m}^2$ の発光が得られた。

【0102】[実施例25] 電子輸送材料として構造式が前記[化9]で示される化合物を用いる以外は実施例21と同様の操作を行い、図3と同構成の有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $400\text{ cd}/\text{m}^2$ の発光が得られた。

【0103】

10 【発明の効果】本発明の化合物[化1]を有機EL素子の正孔輸送材料に用いることにより、上記実施例に示された通り、従来に比べて高輝度な発光が得られる。また化合物[化2]を発光層または電子輸送層に用いて有機EL素子を構成することが可能となった。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の素子の構成について一実施態様(陽極/発光層/陰極)を例示する断面図である。

【図2】本発明の素子の構成について別の実施態様(陽極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/陰極)を例示する断面図である。

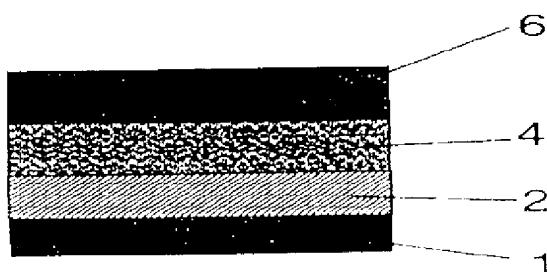
20 【図3】本発明の素子の構成について、更に別の実施態様(陽極/正孔輸送層/発光層/電子輸送層/陰極)を例示する断面図である。

【図4】本発明の素子の構成について、更に別の実施態様(陽極/発光層/電子輸送層/陰極)を例示する断面図である。

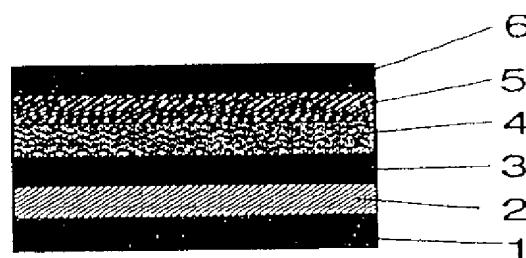
【符号の説明】

1 基板
2 陽極
3 正孔輸送層
4 発光層
5 電子輸送層
6 陰極

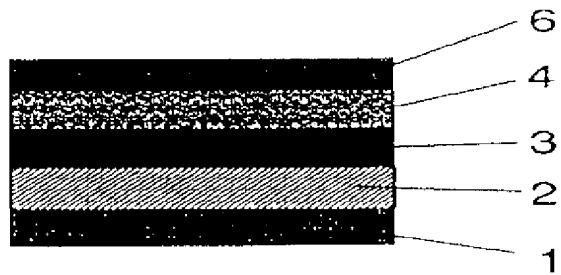
【図1】



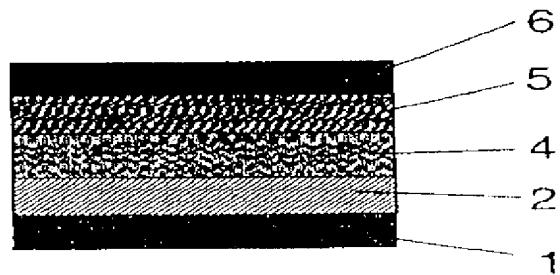
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(51) Int. C1.⁶

H 0 5 B 33/22

識別記号

F I

H 0 5 B 33/22

B

PAT-NO: JP411152253A
**DOCUMENT-
IDENTIFIER:** JP 11152253 A
TITLE: MATERIAL FOR ORGANIC
ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT
AND ORGANIC
ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT
PRODUCED BY USING THE
MATERIAL
PUBN-DATE: June 8, 1999

INVENTOR-INFORMATION:

| NAME | COUNTRY |
|-------------------|----------------|
| ISHIKAWA, HITOSHI | N/A |
| ODA, ATSUSHI | N/A |
| AZUMAGUCHI, TATSU | N/A |

ASSIGNEE-INFORMATION:

| NAME | COUNTRY |
|-------------|----------------|
| NEC CORP | N/A |

APPL-NO: JP09319430

APPL-DATE: November 20, 1997

INT-CL (IPC): C07C211/57, C09K011/00,
C09K011/06, H05B033/14,
H05B033/22

ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To increase the luminance of an organic electroluminescence(EL) element containing a binaphthyl compound in a hole transfer layer and to provide an organic EL element containing a binaphthyl compound as a lightemitting material or an electron transfer material.

SOLUTION: A binaphthyl compound expressed by the formula [at least one of R

COPYRIGHT: (C)1999, JPO